第29卷 第1期 材 料 研 究 学 报 Vol. 29 No. 1
2015 年 1 月 CHINESE JOURNAL OF MATERIALS RESEARCH January 2015

磁控溅射制备非晶铟镓锌氧化物薄膜的电学性能研究

曹明杰 赵 明 庄大明 郭 力 欧阳良琦 李晓龙 宋 军

(先进成形制造教育部重点实验室 清华大学材料学院 北京 100084)

摘 要 采用中频交流磁控溅射法制备非晶铟镓锌氧化物(IGZO)薄膜, 用XRD、XRF、Hall测试等手段进行表征, 研究了溅射电流、氧气流量等工艺参数对其电学性能的影响。结果表明, 制备出的IGZO薄膜均为非晶结构, 成分与靶材基本一致, 电学性能对溅射电流不敏感, 而氧气流量的改变可显著影响薄膜的载流子浓度和Hall迁移率。随着氧气流量的增加, 薄膜的载流子浓度先增加后减小, 而Hall迁移率随着载流子浓度的提高而增加。透过率随着氧气流量的增大先提高然后稳定在90%以上。

关键词 无机非金属材料, IGZO薄膜, 非晶态半导体, 磁控溅射, 迁移率

分类号 TB321, TN304, O484 文章编号 1005-3093(2015)01-0051-04

Electronic Properties of Amorphous Indium-gallium-zinc Oxide Thin Film Fabricated by Magnetron Sputtering

CAO Mingjie ZHAO Ming ZHUANG Daming* GUO Li OUYANG Liangqi LI Xiaolong SONG Jun

(Key Lab of Advanced Processing and Manufacturing, Ministry of Education, School of Materials Science and Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Manuscript received July 8, 2014; in revised form August 25, 2014.

*To whom correspondence should be addressed, Tel:(010)62773925, E-mail:dmzhuang@tsinghua.edu.cn

ABSTRACT Amorphous indium-gallium-zinc oxide (a-IGZO) thin films were fabricated using mid-frequency AC magnetron sputtering deposition with variable oxygen flow rate and sputtering current. The influence of processing parameters on the electronic properties of the films was investigated by means of analyses of XRD and XRF, as well as Hall Effect measurement. The results show that all the samples are amorphous with compositions roughly equal to that of the target. The change of sputtering current had no significant effect on the electronic properties. But the carrier concentration of the samples exhibited an obvious change as the increase of the O_2 flow rate, which slightly increased and then rapidly decreased. The samples with higher carrier concentration exhibited larger Hall mobility. The average transmission of the IGZO thin films deposited with large O_2 flow rate is above 90%.

KEY WORDS inorganic non-metallic materials, IGZO thin film, amorphous semiconductors, magnetron sputtering, mobility

随着信息技术的飞速发展平板显示技术向着更高分辨率、更快响应速度、更低能耗、全透明器件以及柔性显示等目标发展, 对有源驱动显示(如AMLCD)中TFT(thin film transistor)器件的性能也提出了更高的要求。传统的非晶硅TFT的迁移率较低(~ 0.5 $cm^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$), 不能满足高分辨率、大尺寸LCD的显示要求, 更限制其在OLED显示中的应用[1]。2004年, Hosono等首次报道在室温下制备出非晶铟镓锌氧化物(IGZO)薄膜并成功应用于TFT器件, 器件饱和迁移率高达6−9 $cm^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$ [2]。此后非晶IGZO薄膜以其载流子迁移率高、透过率高、制备温度低等优点, 引起了学术界和工业界的关注[1, 3-5]。

目前IGZO薄膜的制备方法主要有真空法和非真空法, 包括脉冲激光沉积[6, 7]、射频磁控溅射[8-10]以及溶液法等[11-13]。磁控溅射的工艺稳定性好、大面积的均匀性高, 适合工业化生产。因此, 本文采用中频交流磁控溅射的方法制备IGZO薄膜, 研究溅射电流、工作气体等工艺参数对薄膜性能的影响。

2014年7月8日收到初稿; 2014年8月25日收到修改稿。

本文联系人: 庄大明, 教授

1 实验方法

采用磁控溅射工艺溅射 $InGaZnO_4$ 四元靶材制备IGZO薄膜, 靶材的尺寸为360 mm×80 mm×5 mm, 成分为In: Ga: Zn =1:1:1, 基底为钠钙玻璃。溅射设备为往复式中频交流磁控溅射系统, 使用双分子泵抽真空系统, 极限真空可达 10^{-5} Pa, 靶基距为70 mm, 在溅射过程中基片架可在平行于靶面的方向往复运动, 以保证得到均匀样品。在基片架内部有加热器, 对基片架上的样品加热。

本文制备样品的本底真空度均为 1×10^{-3} Pa, 主要考察溅射电流、氧气流量对IGZO薄膜性能的影响。在考察溅射电流的影响时, 工作气体为高纯Ar, 氧气流量为0, 溅射电流选择0.50, 0.75, 1.00, 1.50和2.00 A。考察氧气流量的影响时, 溅射电流为1.00 A, 氧气流量分别为0, 0.25, 0.50, 1.00和1.15 sccm, Ar流量在44 sccm左右微调, 以保证溅射气压为0.7 Pa。所制备的薄膜样品厚度控制在200 nm左右。

用X射线衍射仪(D/max-RB)分析薄膜结构。用X射线荧光分析仪(XRF-1800)测定薄膜的成分。用多功能薄膜测试仪(SCI Film Tek 3000NIR)测量薄膜透过率、反射率以及膜厚。用霍尔效应测试仪(HL5500 PC)测定薄膜的电阻率、载流子浓度和Hall迁移率。为减少环境中氧气和水对薄膜的影响, 薄膜制备完到霍尔检测控制在30 min以内, 环境湿度约为30%。

2 结果和讨论

2.1 薄膜的成分

表1列出了不同溅射电流下制备得到的IGZO薄膜中In、Ga、Zn三种金属元素原子百分比。结果表明, 溅射沉积的薄膜中金属元素的成分比例与靶材成分基本一致, 接近1∶1∶1。但是Ga略大于1/3, In、Zn有略微损失, 随着电流增加In的损失逐渐增加, Zn的损失逐渐减少。

2.2 溅射电流对薄膜电学性能的影响

图1给出了不同溅射电流下制备的IGZO薄膜电阻率与载流子浓度的变化。从图1可见, 溅射电流的改变对IGZO薄膜的电学性能基本上没有影响, 载流子浓度在 10^{19} cm^{-3} 左右, 电阻率约为 10^{-1} Ω·cm, 没有显著的变化。

表1 不同溅射电流下制备得到的薄膜成分(%, 原子比)

Table1 Compositions of films deposited under different sputtering current (%, atomic ratios)

Sputtering current /A	In	Ga	Zn
0.50	34.58	39.09	26.34
0.75	33.87	37.91	28.22
1.00	30.23	38.64	31.13
1.50	28.69	37.83	33.48

对于晶体半导体材料, 溅射电流或功率的增大能提高薄膜的结晶性, 从而改变薄膜的电学性能。本文采用XRD来检测薄膜的结构, 分析薄膜的结晶性。

图2给出了溅射电流不同(0.5, 1, 2 A)的情况下制备出的IGZO薄膜的XRD图谱。从图2可见, 三种试样都只有一个非晶漫射峰, 没有呈现出较强的晶体衍射峰, 说明制备出的IGZO薄膜均为非晶结构[14]。因此, 溅射电流的改变并不能改变薄膜的晶体结构, 电学性能基本上不随溅射电流的改变而改变。

2.3 氧气流量对薄膜电学性能的影响

根据TFT器件的工作原理和性能要求, 作为有

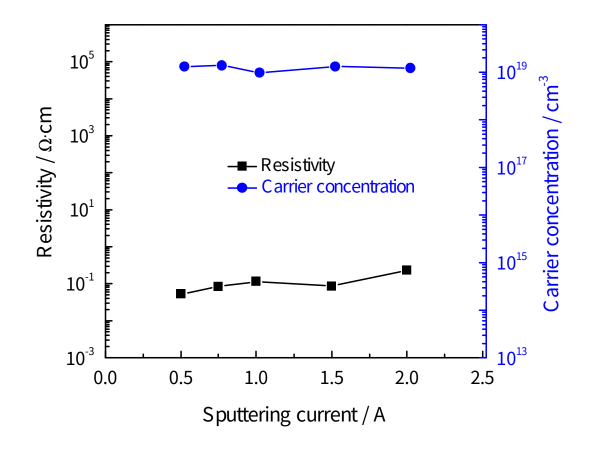


图1 溅射电流不同IGZO薄膜电阻率和载流子浓度

Fig.1 Resistivity and carrier concentration of IGZO films deposited under different sputtering current

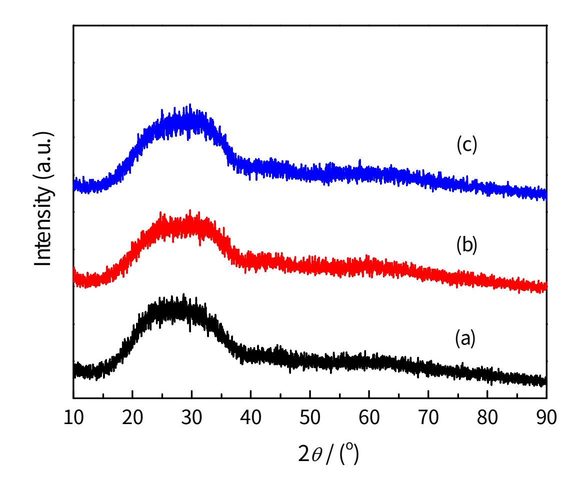


图2 IGZO薄膜的XRD衍射图谱

Fig.2 X-ray diffraction patterns of a-IGZO films (sputtering current, (a) 0.5 A, (b) 1 A, (c) 2 A)

源层的IGZO薄膜需具备合适的电学性能。通过相关计算[15], 适合制备TFT器件的IGZO薄膜电阻率应在 $10^2\sim10^3$ Ω·cm, 载流子浓度应控制在 $10^{14}\sim10^{15}$ cm^{-3}。Hall测试表明本文所制备的IGZO薄膜为n型导电, 载流子主要由氧空位产生。在溅射过程中氧有一定的损失, 因此在纯Ar气氛下制备的IGZO薄膜呈现过低的电阻率, 不适合制备TFT器件。在溅射气体中引入氧气对IGZO薄膜的电学性能应有重要影响, 调控氧气流量可制备出电学性能合适的IGZO薄膜。

图3给出了不同氧气流量下制备得到的IGZO薄膜的电阻率与载流子浓度。从图3可见, 随着氧气流量的增加IGZO薄膜的载流子浓度先增加后逐渐减小, 相应地电阻率先下降后逐渐上升。在纯Ar气氛下溅射沉积IGZO氧的损失较多, 薄膜中悬挂键等缺陷也较多, 结构无序。在溅射过程中引入氧气能填补一定的氧空位, 改善薄膜的微结构, 使局部化学键更有序, 从而提高载流子浓度并降低电阻率。但是, 随着氧气流量的进一步增加薄膜中氧空位不断减少。而氧空位是浅施主型缺陷, 可以提供电子, 因此氧空位的减少必然导致载流子浓度下降, 电阻率上升。当氧气流量约为1.15 sccm时IGZO薄膜的载流子浓度可控制在 10^{15} cm^{-3}左右, 比较适合制作TFT器件。

图4给出了IGZO薄膜迁移率与载流子浓度的对应关系。图4表明, 随着载流子浓度的上升迁移率也逐渐上升, 这是IGZO薄膜的一大特性。对于常见的半导体材料, 载流子浓度的上升使离化杂质散射增强, 从而降低迁移率。但是非晶IGZO的电子输运机制有所不同, 在其迁移率边以上存在一定的势垒。当载流子浓度增加时势垒减小, 迁移率增加[16]。即当载流子浓度较低时费米能级在迁移率边以下, 处于带尾态中, 只有少数被带尾态缺陷捕获的载流子通过热激发跃迁到迁移率边以上, 参与导电, 此时迁移率较小; 当载流子浓度增加时带尾态被电子填充, 费米能级超过迁移率边, 此时载流子具有较高能量越过势垒, 从而迁移率增大。虽然有源层需要较低载流子浓度($10^{14}\sim10^{15}$ cm^{-3}), IGZO的迁移率在 10^0 $cm^2\cdot V^{-1}\cdot s^{-1}$水平, 但是TFT器件工作时栅压的作用使载流子向绝缘层一侧聚集, 能带弯曲, 费米能级将越至迁移率边以上, 从而表现出较高的迁移率。

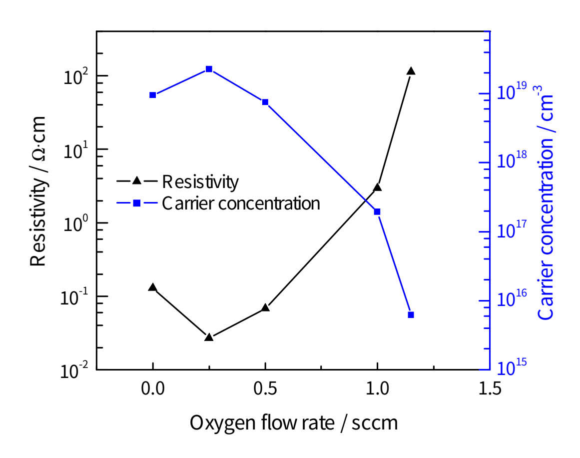


图3 氧气流量对薄膜电阻率和载流子浓度的影响

Fig.3 Dependence of resistivity and carrier concentration on oxygen flow rate

2.4 氧气流量与薄膜光学性能

IGZO作为氧化物半导体, 禁带宽度大, 透过率高。图5给出了不同氧气流量下制备的IGZO薄膜的透过率曲线。为了校准薄膜的透过率, 在测试时分别检测镀有IGZO薄膜的钠钙玻璃透过率 T_1 以及钠钙玻璃本身的透过率 T_0, 将 T_1/T_0 的值作为薄膜的透过率。检测结果表明, 当氧气流量较小时薄膜的透过率相对较低, 可见光部分的透过率在85%左右(膜厚200 nm)。其原因是, 氧元素的大量缺失使薄膜的缺陷较多, 金属氧化不充分, 甚至有金属单质的析出, 降低了薄膜的透过率。氧气流量的增加填补

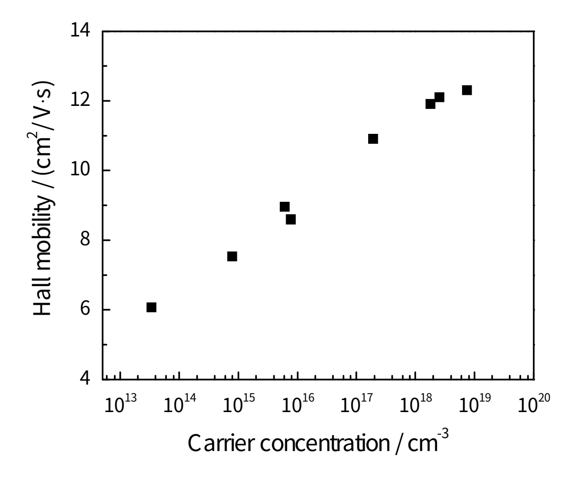


图4 IGZO薄膜Hall迁移率与载流子浓度的关系

Fig.4 Relationship between Hall mobility and carrier concentration

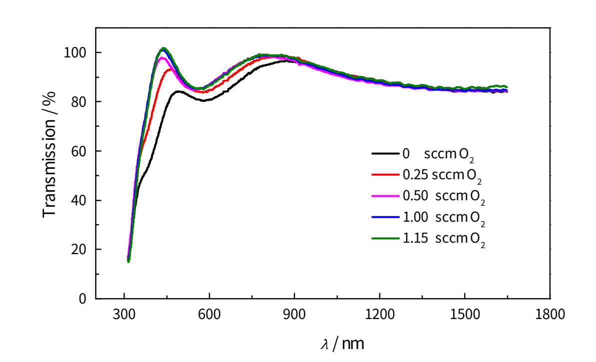
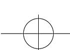


图5 氧气流量对IGZO薄膜透过率的影响

Fig.5 The influence of oxygen flow rate on the transmission of IGZO films



了氧空位, 薄膜微结构更有序, 透过率增加, 基本稳定在90%以上。这与低氧气流量下薄膜的电学性能变化规律一致。微量氧气气氛的引入在一定程度上改善了薄膜的微结构, 使其具有更低的电阻率和更高的透过率。

3 结 论

采用磁控溅射工艺溅射$InGaZnO_4$四元陶瓷靶, 可制备出成分稳定、电学性能适用于TFT器件制作并具有高透过率的非晶IGZO薄膜。IGZO薄膜的电学性能对溅射电流的改变不敏感。氧气流量的增大改善了氧元素缺少造成的薄膜微结构的无序性, 使局部化学键更有序, 从而在一定程度上提高了载流子浓度与Hall迁移率。氧气流量的进一步增大填补了氧空位, 降低载流子浓度, 使薄膜电阻率提高。薄膜的Hall迁移率随着载流子浓度的增加而增加。在氧气流量为1.15 sccm时溅射出的IGZO薄膜载流子浓度为6.14×10^{15} cm^{-3}, Hall迁移率为8.96 $cm^2\cdot V^{-1}\cdot s^{-1}$、可见光透过率约为90%, 其电学性能适合制备TFT器件。

参 考 文 献

1 Kamiya T, Nomura K, Hosono H, Present status of amorphous In-Ga-Zn-O thin-film transistors, Science and Technology of Advanced Materials, **11**(4), 44305(2010)

2 Nomura K, Ohta H, Takagi A, Kamiya T, Hirano M, Hosono H, Room-temperature fabrication of transparent flexible thin-film transistors using amorphous oxide semiconductors, Nature, **432**(7016), 488(2004)

3 Yabuta H, Sano M, Abe K, Aiba T, Den T, Kumomi H, Nomura K, Kamiya T, Hosono H, High-mobility thin-film transistor with amorphous $InGaZnO_4$ channel fabricated by room temperature rf-magnetron sputtering, Applied Physics Letters, **89**, 112123(2006)

4 Kamiya T, Nomura K, Hosono H, Origins of high mobility and low operation voltage of amorphous oxide TFTs: electronic structure, electron transport, defects and doping, Journal of Display Technology, **5**(7), 273(2009)

5 Park J S, Maeng W, Kim H, Park J, Review of recent developments in amorphous oxide semiconductor thin-film transistor devices, Thin Solid Films, **520**(6), 1679(2012)

6 CHEN Jiangbo, Investigation on fabrication and properties of InGaZnO thin films by pulsed laser deposition, Ph D thesis, Beijing, Beijing University of Technology (2012)
(陈江博, PLD制备InGaZnO薄膜及其物理性质研究,博士学位论文,北京, 北京工业大学(2012))

7 Suresh A, Gollakota P, Wellenius P, Dhawan A, Muth J F, Transparent, high mobility InGaZnO thin films deposited by PLD, Thin Solid Films, **516**(7), 1326(2008)

8 Hsu H H, Chang C Y, Cheng C H, Room-temperature flexible thin film transistor with high mobility, Current Applied Physics, **13**(7), 1459(2013)

9 Fung T, Abe K, Kumomi H, Kanicki J, Electrical instability of RF sputter amorphous In-Ga-Zn-O thin-film transistors, Journal of Display Technology, **5**(12), 452(2009)

10 Jun-Young H, Jae-Hong J, Hee-Hwan C, Kang-Woong L, Jong-Huyn S, Min-Ki R, Sang-Hee K P, Chi-Sun H, Woo-Seok C, Effects of the composition of sputtering target on the stability of InGaZnO thin film transistor, Thin Solid Films, **519**(20), 6868(2011)

11 Kim G H, Du Ahn B, Shin H S, Jeong W H, Kim H J, Kim H J, Effect of Indium composition ratio on solution-processed nanocrystalline InGaZnO thin film transistors, Applied Physics Letters, **94**, 233501(2009)

12 Tsay C Y, Yan T Y, Solution processed amorphous InGaZnO semiconductor thin films and transistors, Journal of Physics And Chemistry of Solids, **75**(1), 142(2014)

13 Pu H F, Zhou Q F, Yue L, Zhang Q, Solution-processed Indium Gallium Zinc oxide thin-film transistors with infrared irradiation annealing, Semiconductor Science and Technology, **28**(10), 105002 (2013)

14 Nomura K, Takagi A, Kamiya T, Ohta H, Hirano M, Hosono H, Amorphous oxide semiconductors for high-performance flexible thin-film transistors, Japanese Journal of Applied Physics, **45**(5B), 4303(2006)

15 Kagan C R, Andry P, WANG Jun, LIAO Yanping, *Thin-Film Transistors* (Beijing, Publishing House of Electronics Industry, 2008) p. 190
(Kagan Cherie R., Andry Paul 编, 王 军, 廖燕平译, 薄膜晶体管(TFT)及其在平板显示中的应用 (北京,电子工业出版社, 2008) p. 190)

16 Takagi A, Nomura K, Ohta H, Yanagi H, Kamiya T, Hirano M, Hosono H, Carrier transport and electronic structure in amorphous oxide semiconductor, a-$InGaZnO_4$, Thin Solid Films, **486**(1-2), 38 (2005)

